

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-125359

(43)Date of publication of application : 21.05.1993

(51)Int.Cl.

C09K 11/06

C09K 11/00

G09F 9/30

H05B 33/14

(21)Application number : 03-288485

(71)Applicant : SUMITOMO CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 05.11.1991

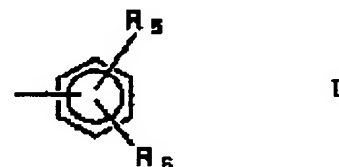
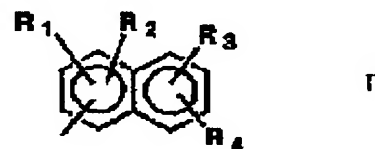
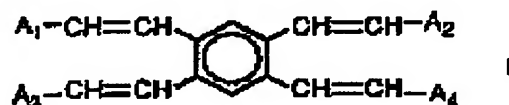
(72)Inventor : ONISHI TOSHIHIRO
NOGUCHI MASANOBU
DOI HIDEJI

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject element suitable as display devices such as a planar light source as a back light or a flat panel display due to its excellent uniformity, stability, etc., of light emission by forming a luminous layer containing an aromatic compound having a specific structure.

CONSTITUTION: An organic electroluminescent element having a luminous layer containing an aromatic compound expressed by formula I [A1 to A4 are formula II or III (R1 to R6 are H, 1-12C alkyl, etc.), etc.] between a pair of electrodes in which at least either is (semi) transparent. 1,2,4,5-Tetrakis(phenylethyl)benzene, etc., are preferred as the compound expressed by formula I, which is obtained by reacting, e.g. 1,2,4,5-tetrakis (bromomethyl)benzene with triphenylphosphine, providing a phosphonium salt and then reacting the resultant phosphonium salt with an aldehyde. The luminous layer is preferably formed by a vacuum vapor deposition method.



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-125359

(43)公開日 平成5年(1993)5月21日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 K 11/06		Z 6917-4H		
11/00		F 6917-4H		
G 0 9 F 9/30	3 6 5	D 7926-5G		
H 0 5 B 33/14				

審査請求 未請求 請求項の数1(全 7 頁)

(21)出願番号	特願平3-288485	(71)出願人	000002093 住友化学工業株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号
(22)出願日	平成3年(1991)11月5日	(72)発明者	大西 敏博 茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式 会社内
		(72)発明者	野口 公信 茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式 会社内
		(72)発明者	土居 秀二 茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式 会社内
		(74)代理人	弁理士 諸石 光▲ひろ▼ (外1名)

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57)【要約】

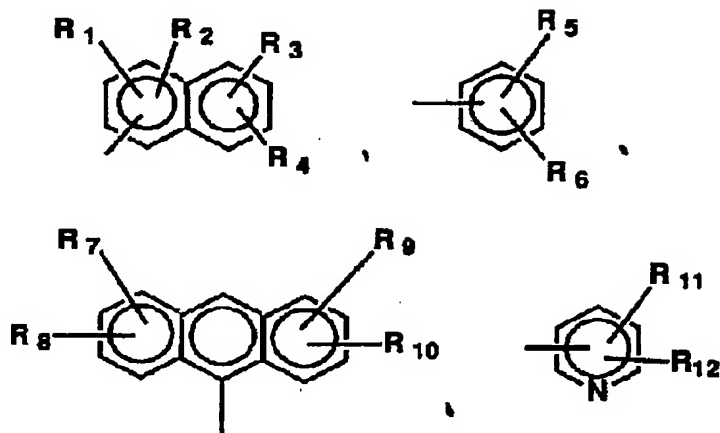
【構成】ベンゼンの1, 2, 4, 5位にアリールエテニル基が置換された化合物を発光材料として用いた有機エレクトロルミネッセンス素子。

【効果】発光の均一性、安定性等、発光特性の優れた有機エレクトロルミネッセンス素子が提供できる。

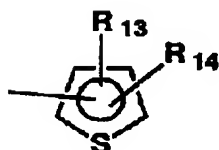
2

〔式中A₁、A₂、A₃、A₄はそれぞれ独立に下記化2および化3から選ばれる基を表わす。〕

【化2】

$$\begin{array}{c} A_1-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}=\text{CH}-A_2 \\ A_2-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}=\text{CH}-A_1 \end{array}$$


【化3】



とし、これと電子写真の感光体等に用いられている有機正孔輸送化合物とを積層した二層構造を有する有機EL素子を作製し、低電圧駆動、高効率、高輝度の有機EL素子を実現させた（特開昭59-194393号公報）。有機EL素子は、無機EL素子に比べ、低電圧駆動、高輝度に加えて多数の色の発光が容易に得られるという特長があることから素子構造や有機蛍光色素、有機電荷輸送化合物について多くの試みが報告されている。

〔ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス (Jpn. J. Appl. Phys.) 第27巻、L269頁 (1988年) 〕、〔ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス (J. Appl. Phys.) 第65巻、3610頁 (1989年) 〕。

【発明が解決しようとする課題】これまで報告されてきた有機EL素子は高輝度ではあるが、発光素子の寿命が短いという問題がある。素子の発熱により発光層に構造変化が生じ、劣化することが原因であると言われている。そのため熱的に安定な発光層を構成する発光材料が求められていた。

【課題を解決するための手段】本発明者等は、有機ＥＬ素子の発光材料について鋭意検討した結果、発光性化合物として、ベンゼン環を骨格にもつ芳香族ジニレン化合物のなかで、４つのジニレン基を含有する化合物を用いることにより、均一な発光層を形成し、均一に発光する有機ＥＬ素子が得られることを見出し本発明に至った。すなわち本発明は、少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に少なくとも発光層を有する有機エ

【0001】

【0002】

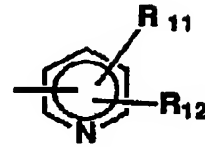
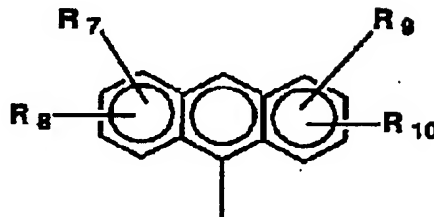
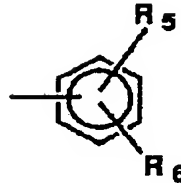
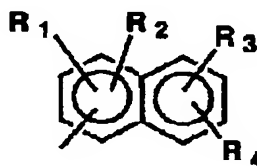
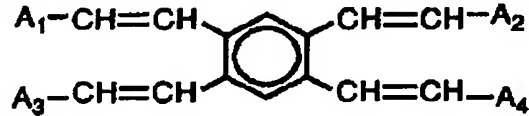
【従来の技術】無機蛍光体を発光材料として用いた無機エレクトロルミネッセンス素子（以下無機EL素子）は、例えばバックライトとしての面状光源やフラットパネルディスプレイ等の表示装置に用いられているが発光させるのに高電圧の交流が必要であった。

【0003】最近、Tangらは有機蛍光色素を発光層

レクトルミネッセンス素子において、該発光層が、下記化4

【0006】

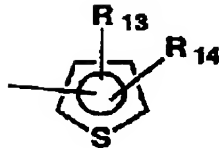
【化4】



及び

【0008】

【化6】



(R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆、R₇、R₈、R₉、R₁₀、R₁₁、R₁₂、R₁₃、R₁₄はそれぞれ独立に水素、炭素数1～12のアルキル基またはアルコキシ基、炭素数6～14のアリール基またはアリールオキシ基、ニトロ基、複素環化合物基で示される基を意味する。)で表される化合物から選ばれた少なくとも一種の芳香族化合物を含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することにある。以下、本発明の有機EL素子について詳細に説明する。

【0009】本発明に用いられる発光材料は前記化4で表される芳香族化合物であり、ここでA₁、A₂、A₃、A₄は上記したようにフェニル基、ナフチル基、アントリル基、ピリジル基、チエニル基、あるいはそれらに炭素数1～12のアルキルまたはアルコキシ基、炭素数6～14のアリールまたはアリールオキシ基、ニトロ基または複素環化合物基が核置換された誘導体である。これらのなかで成膜性が良好なフェニル基、ピリジル基およびそれらの誘導体が好ましい。ここで、炭素数1～12のアルキル基としては、例えば、メチル、エチル、ブチル、オクチルなどであり、メチル、エチルが好ましい。または炭素数1～12のアルコキシ基としては

〔式中A₁、A₂、A₃、A₄はそれぞれ独立に下記化5および化6から選ばれる基を表わす。〕

【0007】

【化5】

メトキシ、エトキシ、ブトキシ、ヘプチルオキシなどであり、メトキシ、エトキシが好ましい。アリール基としてはフェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、4-プロピルフェニル基、4-ブチルフェニル基、4-ペンチルフェニル基、4-ヘキシルフェニル基、1-ナフタレン基、2-ナフタレン基、アリールオキシ基としては4-メトキシフェニル基、4-エトキシフェニル基、4-プロポキシフェニル基、4-ブトキシフェニル基、4-ペンチルオキシフェニル基、4-ヘキシルオキシフェニル基、フェノキシ基が例示される。複素環化合物基としてはチエニル基、ピリジン-2-イル基、ピリジン-3-イル基、ピリジン-4-イル基が例示される。

【0010】具体的な化合物として1, 2, 4, 5-テトラキス(フェニルエチニル)ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス(2'-ピリジルエチニル)ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス(p-メトキシフェニルエチニル)ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス(2, 5-ジメトキシフェニルエチニル)ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス(ナフチルエチニル)ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス(アントラニルエチニル)ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス(チエニルエチニル)ベンゼンなどが挙げられるが、1, 2, 4, 5-テトラキス(フェニルエチニル)ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス(p-メトキシフェニルエチニル)ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス(2, 5-ジメトキシフェニルエチニル)ベンゼンが蛍光強度、成膜性の点から好ましい。

【0011】前記化4で示される芳香族化合物はベンゼ

ン誘導体であり、合成法については特に限定されないが、炭素-炭素二重結合を形成する反応を利用するのが一般的であり、Wittig反応、スルホニウム塩分解法、脱ハロゲン化水素法などが例示される。具体的には、例えば、1, 2, 4, 5-テトラキス(ブロムメチル)ベンゼンにトリフェニルホスフィンを反応させ、ホスホニウム塩とした後、これに相当するアルデヒドを反応(Wittig反応)させて合成する。また、これらの化合物を有機EL素子の発光層として用いる場合、その純度が発光特性に影響を与えるため合成後、再沈精製、昇華精製等の純化をすることが望ましい。

【0012】上記化4で示される芳香族化合物を含む発光層は真空蒸着法あるいは該芳香族化合物の溶液をスピコーティング法、キャスト法、ディッピング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法等、公知の方法で形成することができる。なお、塗布法により薄膜化した場合には、溶媒を除去するため、減圧下あるいは不活性雰囲気下、30~200℃、好ましくは60~100℃の温度で熱処理することが望ましい。膜厚の微妙な制御を行うという点では真空蒸着法を用いることが

好ましい。

【0013】また、本発明においては、発光層として上記の芳香族化合物と既知の高分子化合物を混合した層を用いることも含まれる。この場合、使用する高分子化合物は特に限定されないが、電荷輸送性、発光性を極度に阻害しないものが好ましく、例えば、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリ(p-フェニレンビニレン)及びその誘導体、ポリ(2, 5-チエニレンビニレン)及びその誘導体、ポリカーボネート、ポリシロキサン、ならびにポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン及びポリ塩化ビニル等のビニル系重合体などが例示される。なお、ここでポリ(N-ビニルカルバゾール)、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリ(p-フェニレンビニレン)及びその誘導体、ポリ(2, 5-チエニレンビニレン)及びその誘導体は下記に言及する電荷輸送性化合物としての作用も有する。

【0014】上記芳香族化合物と高分子化合物との混合層の形成は該高分子化合物及び該芳香族化合物を溶液状態または熔融状態で混合し、該芳香族化合物を分散させた後、上記の塗布法を使うことができる。この場合、高分子に分散させる芳香族化合物の量に特に制限はないが、高分子化合物100重量部に対して通常1~100重量部、好ましくは20~70重量部である。

【0015】ポリ(p-フェニレンビニレン)及びその誘導体ならびにポリ(2, 5-チエニレンビニレン)及びその誘導体等の前駆体高分子を使用した場合は溶液状態で該芳香族アミン化合物と混合後、不活性雰囲気下、30~200℃、好ましくは60~100℃の温度で熱

処理を行い、目的とする高分子に変換させる。

【0016】本発明においては発光層といずれかの電極の間に電荷輸送層(なお、本発明において電荷輸送層は特に断らない限り正孔輸送層および電子輸送層の総称を意味する。)を設けてもよい。その際使用される電荷輸送材料(正孔輸送材料と電子輸送材料を総称)としては特に限定されず、例えば、トリフェニルジアミン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピラゾリン誘導体、アリールアミン誘導体、スチルベン誘導体、アントラキノジメタン誘導体などを用いることができる。具体的には、例えば特開平2-209988号公報、同3-37992号公報に記載されているもの等、公知のものが使用可能である。これらのうち、電子輸送性の化合物と正孔輸送性の化合物のいずれか一方、または両方を同時に使用すればよい。電荷輸送層の厚みは使用する化合物の種類等によっても異なるので、十分な成膜性と発光特性を阻害しない量範囲でそれらを考慮して適宜決めればよい。

【0017】これら電荷輸送材料は公知の方法、例えば真空蒸着法、あるいは該電荷輸送材料の溶液のスピコーティング法、キャスト法、ディッピング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法等、化合物に応じて適宜採用するにより電荷輸送層を形成することができる。電荷輸送材料が高分子化合物でない場合、膜厚の微妙な制御を行うという点では、真空蒸着法を用いることが好ましい。

【0018】本発明においては、さらに発光層として、前記発光材料である芳香族化合物と前記電荷輸送材料との混合物を使用することもできるし、またこれらの混合物を既知の高分子化合物を媒体とし、これに分散した層として用いることも可能である。発光材料と電荷輸送材料の混合比は特に限定されないが、好ましくは0.1:100~1:1(重量)の範囲であり、また高分子化合物とこれら材料の和の比も特に限定されないが、好ましくは100:0.01~1:3(重量)の範囲である。この場合、使用する高分子化合物は前述のもので可視光に対する吸収が強いものが好適に用いられる。具体的にはポリ(N-ビニルカルバゾール)、ポリチオフェン及びその誘導体、ポリ(p-フェニレンビニレン)及びその誘導体、ポリ(2, 5-チエニレンビニレン)及びその誘導体、ポリカーボネート、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリシロキサンなどが例示される。混合層の形成は上記と同様な手法が採用できる。また、これらの層を一層のみで使用するができるが、必要に応じて別の電荷輸送材料の層等を設けてもよい。

【0019】本発明の有機EL素子の構造について以下に述べる。素子の構造自体は公知の構造をとることができる。例えば、これまで述べた陽極/電荷(正孔)輸送層/発光層/陰極(/は層を積層したことを示す)、あるいは陽極/電荷(正孔または電子)輸送・発光(電荷

輸送材料と発光材料と混合物)層/陰極の構造以外に、陽極と電荷(正孔)輸送層との間に導電性高分子層を有する組み合わせの構造をとることもできるし、発光層と陰極との間に電荷(電子)輸送層を有する組み合わせの構造をとることもできる。更に、陽極/導電性高分子/電荷(正孔)輸送層/発光層/電荷(電子)輸送層/陰極の構造をとることもできる。

【0020】以下、有機EL素子の作製について陽極/電荷(正孔)輸送層/発光層/陰極の構造のものを例にとって作製法を以下に述べる。一对の電極のうち透明、または半透明な電極としてはガラス、透明プラスチック等の透明基板の上に透明または半透明電極を形成する。これを陽極とする。電極の材料としては導電性の金属酸化物膜、半透明の金属薄膜等が用いられる。具体的にはインジウム・スズ・オキサイド(ITO)、酸化スズ(NESA)、Au、Pt、Ag、Cu等が用いられる。作製方法としては、真空蒸着法、スパッタリング法、メッキ法などが用いられる。

【0021】次いで前記の電荷輸送層を設けるが、膜厚としては $5\text{Å} \sim 10\mu\text{m}$ 、好ましくは $10\text{Å} \sim 1\mu\text{m}$ である。電流密度を上げて発光輝度を上げるためには $20 \sim 5000\text{Å}$ の範囲が好ましい。

【0022】次に電荷輸送層の上に発光層を設けるが、発光層の膜厚は、少なくともピンホールが発生しないような厚みが必要であるが、あまり厚いと素子の抵抗が増加し、高い駆動電圧が必要となり好ましくない。したがって、発光層の膜厚は $5\text{Å} \sim 10\mu\text{m}$ 、好ましくは $10\text{Å} \sim 1\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $50 \sim 2000\text{Å}$ である。なお、電荷輸送材料と発光材料との混合層の場合もこの範囲が好ましい。

【0023】次いで、発光層の上に電極を設ける。この電極は電子注入陰極となる。その材料としては、特に限定されないが、イオン化エネルギーの小さい材料が好ましい。例えば、Al、In、Mg、Mg-Ag合金、Mg-In合金、グラファイト薄膜等が用いられる。該陰極の作製方法としては公知の真空蒸着法、スパッタリング法等が用いられる。

【0024】上記のようにして本発明の有機EL素子を作製することができるが、別の構造のものについても同様な方法で作製が可能である。

【0025】

【作用】本発明において発光材料として使用の4つのビニレン基をもつベンゼン誘導体は、4つのビニレン基に π 共役系が拡がっており、そのうち1つまたは2つの置換基が何らかの原因で変性しても分子としては発光材料としての能力を有する点と、融点や分解温度が比較的高いので熱的に安定であると考えられる。

【0026】

【実施例】以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0027】参考例1

(1, 2, 4, 5-テトラキス(p-メトキシフェニルエチニル)ベンゼンの合成) 1, 2, 4, 5-テトラキス(ブロムメチル)ベンゼンとトリフェニルホスフィンとをN, N-ジメチルホルムアミド(DMF)中、 150°C で3時間反応させた。この反応液を室温まで冷却し、生成した沈殿物を濾過してDMFで洗浄した後、減圧乾燥してホスホニウム塩を得た。このホスホニウム塩とp-メトキシベンズアルデヒドとをエタノールに溶解させ、リチウムエトキシドのエタノール溶液を室温で滴下した。滴下後さらに1時間攪拌し反応(Wittig)させた。生成した沈殿物を濾過して、順次エタノール、エタノール/水、エタノールで洗浄した後、減圧乾燥して1, 2, 4, 5-テトラキス(p-メトキシフェニルエチニル)ベンゼンを得た。

【0028】参考例2

(1, 2, 4, 5-テトラキス(フェニルエチニル)ベンゼンの合成) p-メトキシベンズアルデヒドの代わりにベンズアルデヒドを用いて反応を行なった以外は参考例1と同一の方法で1, 2, 4, 5-テトラキス(フェニルエチニル)ベンゼンを合成した。

【0029】参考例3

(1, 2, 4, 5-テトラキス(2, 5-ジメトキシフェニルエチニル)ベンゼンの合成) p-メトキシベンズアルデヒドの代わりに2, 5-ジメトキシベンズアルデヒドを用いて反応を行なった以外は参考例1と同一の方法で1, 2, 4, 5-テトラキス(2, 5-ジメトキシフェニルエチニル)ベンゼンを合成した。

【0030】実施例1

スパッタリングにより 200Å の厚みでITO膜を付けたガラス基板に電荷(正孔)輸送層として4, 4'-ビス(3-メチル-ジフェニルアミノ)ビフェニル(以下TPD)を $3 \times 10^{-6}\text{Torr}$ の真空下で蒸着により 1000Å の厚みで成膜した。次いで、その上に発光層として参考例1で合成した1, 2, 4, 5-テトラキス(p-メトキシフェニルエチニル)ベンゼンを 600Å 、更にその上に陰極としてインジウムを 6000Å 蒸着して有機EL素子を作製した。蒸着のときの真空度はすべて $3 \times 10^{-6}\text{Torr}$ 以下であった。この素子に電圧 20V を印加したところ、電流密度 $16.8\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流が流れ、輝度 $0.011\text{cd}/\text{m}^2$ の青白色の均一なEL発光が観察された。輝度は電流密度に比例していた。

【0031】実施例2

スパッタリングにより 200Å の厚みでITO膜を付けたガラス基板に電荷(正孔)輸送層として4, 4'-ビス(3-メチル-ジフェニルアミノ)ビフェニル(以下TPD)を $3 \times 10^{-6}\text{Torr}$ の真空下で蒸着により 1000Å の厚みで成膜した。次いで、その上に発光層として参考例2で合成した1, 2, 4, 5-テトラキス

(フェニルエチニル) ベンゼンを 1000 \AA 、更にその上に陰極としてインジウムを 6000 \AA 蒸着して有機 EL 素子を作製した。蒸着のときの真空度はすべて $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ 以下であった。この素子に電圧 18 V を印加したところ、電流密度 156 mA/cm^2 の電流が流れ、輝度 0.692 cd/m^2 の青白色の均一な EL 発光が観察された。輝度は電流密度に比例していた。

【0032】実施例 3

スパッタリングにより 200 \AA の厚みで ITO 膜を付けたガラス基板上に、 0.1% のポリアニリンの N-メチルピロリドン溶液をスピンコート後乾燥することにより、 200 \AA の電荷 (正孔) 輸送層を作製した。次いで、その上に発光層として参考例 3 で合成した 1, 2,

4, 5-テトラキス (2, 5-ジメトキシフェニルエチニル) ベンゼンを 1000 \AA 、更にその上に陰極としてインジウムを 6000 \AA 蒸着して有機 EL 素子を作製した。蒸着のときの真空度はすべて $3 \times 10^{-6}\text{ Torr}$ 以下であった。この素子に電圧 16 V を印加したところ、電流密度 119 mA/cm^2 の電流が流れ、輝度 3 cd/m^2 の青白色の均一な EL 発光が観察された。輝度は電流密度に比例していた。

【0033】

【発明の効果】本発明の発光材料を用いた有機 EL 素子は、発光の均一性、安定性等優れた発光特性を示し、バックライトとしての面状光源、フラットパネルディスプレイ等の表示装置に好適に用いることができる。

【手続補正書】

【提出日】平成 3 年 12 月 20 日

【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】変更

【補正内容】

【0010】具体的な化合物として 1, 2, 4, 5-テトラキス (フェニルエチニル) ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス (2'-ピリジリエチニル) ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス (p-メトキシフェニルエチニル) ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス (2, 5-ジメトキシフェニルエチニル) ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス (ナフチルエチニル) ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス (アントラニルエチニル) ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス (チエニルエチニル) ベンゼンなどが挙げられるが、1, 2, 4, 5-テトラキス (フェニルエチニル) ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス (p-メトキシフェニルエチニル) ベンゼン、1, 2, 4, 5-テトラキス (2, 5-ジメトキシフェニルエチニル) ベンゼンが蛍光強度、成膜性の点から好ましい。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0027

【補正方法】変更

【補正内容】

【0027】参考例 1

(1, 2, 4, 5-テトラキス (p-メトキシフェニルエチニル) ベンゼンの合成) 1, 2, 4, 5-テトラキス (ブロムメチル) ベンゼンとトリフェニルホスフィン $\text{P}(\text{C}_6\text{H}_5)_3$ を N, N-ジメチルホルムアミド (DMF) 中、 150°C で 3 時間反応させた。この反応液を室温まで冷却し、生成した沈殿物を濾過して DMF で洗浄した後、減圧乾燥してホスホニウム塩を得た。このホスホニウム塩と p

メトキシベンズアルデヒドとをエタノールに溶解させ、リチウムエトキシドのエタノール溶液を室温で滴下した。滴下後さらに 1 時間攪拌し反応 (Wittig 反応) をさせた。生成した沈殿物を濾過して、順次エタノール、エタノール/水、エタノールで洗浄した後、減圧乾燥して 1, 2, 4, 5-テトラキス (p-メトキシフェニルエチニル) ベンゼンを得た。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0028

【補正方法】変更

【補正内容】

【0028】参考例 2

(1, 2, 4, 5-テトラキス (フェニルエチニル) ベンゼンの合成) p-メトキシベンズアルデヒドの代わりにベンズアルデヒドを用いて反応を行なった以外は参考例 1 と同一の方法で 1, 2, 4, 5-テトラキス (フェニルエチニル) ベンゼンを合成した。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0029

【補正方法】変更

【補正内容】

【0029】参考例 3

(1, 2, 4, 5-テトラキス (2, 5-ジメトキシフェニルエチニル) ベンゼンの合成) p-メトキシベンズアルデヒドの代わりに 2, 5-ジメトキシベンズアルデヒドを用いて反応を行なった以外は参考例 1 と同一の方法で 1, 2, 4, 5-テトラキス (2, 5-ジメトキシフェニルエチニル) ベンゼンを合成した。

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

【補正内容】

【0030】実施例1

スパッタリングにより200Åの厚みでITO膜を付けたガラス基板に電荷（正孔）輸送層として4,4'-ビス（3-メチルージフェニルアミノ）ビフェニル（以下TPD）を 3×10^{-6} Torrの真空下で蒸着により1000Åの厚みで成膜した。次いで、その上に発光層として参考例1で合成した1,2,4,5-テトラキス（p-メトキシフェニルエチニル）ベンゼンを600Å、更にその上に陰極としてインジウムを6000Å蒸着して有機EL素子を作製した。蒸着のときの真空度はすべて 3×10^{-6} Torr以下であった。この素子に電圧20Vを印加したところ、電流密度16.8mA/cm²の電流が流れ、輝度0.011cd/m²の青白色の均一なEL発光が観察された。輝度は電流密度に比例していた。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0031

【補正方法】変更

【補正内容】

【0031】実施例2

スパッタリングにより200Åの厚みでITO膜を付けたガラス基板に電荷（正孔）輸送層として4,4'-ビス（3-メチルージフェニルアミノ）ビフェニル（以下TPD）を 3×10^{-6} Torrの真空下で蒸着により1000Åの厚みで成膜した。次いで、その上に発光層と

して参考例2で合成した1,2,4,5-テトラキス（フェニルエチニル）ベンゼンを1000Å、更にその上に陰極としてインジウムを6000Å蒸着して有機EL素子を作製した。蒸着のときの真空度はすべて 3×10^{-6} Torr以下であった。この素子に電圧18Vを印加したところ、電流密度156mA/cm²の電流が流れ、輝度0.692cd/m²の青白色の均一なEL発光が観察された。輝度は電流密度に比例していた。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0032

【補正方法】変更

【補正内容】

【0032】実施例3

スパッタリングにより200Åの厚みでITO膜を付けたガラス基板上に、0.1%のポリアニリンのN-メチルピロリドン溶液をスピンコート後乾燥することにより、200Åの電荷（正孔）輸送層を作製した。次いで、その上に発光層として参考例3で合成した1,2,4,5-テトラキス（2,5-ジメトキシフェニルエチニル）ベンゼンを1000Å、更にその上に陰極としてインジウムを6000Å蒸着して有機EL素子を作製した。蒸着のときの真空度はすべて 3×10^{-6} Torr以下であった。この素子に電圧16Vを印加したところ、電流密度119mA/cm²の電流が流れ、輝度3cd/m²の青白色の均一なEL発光が観察された。輝度は電流密度に比例していた。